全燐光型OLED照明パネルの製品開発

Development of the All-Phosphorescent OLED Product for Lighting Applications

古川慶一*柏木寛司*辻村隆俊*
Keiichi FURUKAWA Hiroshi KASHIWAGI Takatoshi TSUJIMURA

要旨

コニカミノルタは、2011年秋に世界で初めて燐光発 光材料だけを用いた全燐光型OLED照明パネルを製品化 した。OLED照明パネルを量産化する際、①発光寿命性 能の予測方法、②駆動中に絶縁破壊が生じ、短絡して非 発光となる不良(ショート不良)の事前検査方法、③高温 保存時の発光ムラの定量化方法、の三つの信頼性評価技 術の確立が早急な課題であった。

寿命挙動の統計的解析を基に、寿命評価の加速試験方法と推定方法を独自に開発し、短期間で輝度半減時間の推定が可能となった。また、リーク特性とショート不良確率の関係を明確にし、事前にショート不良確率の高いパネルを検出可能な検査方法を確立した。発光ムラ評価においては、再現性が高い独自の評価方法を確立し、生産委託先と共有化した。課題であったこれらの評価技術の確立が、OLED照明パネルの製品化に繋がった。

Abstract

In Autumn, 2011, Konica Minolta marketed a lighting product that uses only phosphorescent-emitting organic materials: the world's first all-phosphorescent OLED (organic light-emitting diode) lighting panel. In the mass-production of OLED lighting panels, new technologies for the evaluation of reliability have been urgently needed, especially (1) a way to estimate emission lifetime, (2) a way to predict non-emission defects due to short circuits caused by insulation breakdown during operation, and (3) a way to quantify mura due to high-temperature storage.

An accelerated test method and a method of estimating lifetime were developed based on a statistical analysis of lifetime behavior, allowing a sampling method of swiftly estimating the half-decay time of luminance. Regarding shorts during operation, the correlation between leak current characteristics and the probability of shorts provided a method of predicting shorts. In addition, a new, highly-repeatable method of evaluating mura was developed and shared with outside production companies. Based on these newly developed methods, the world's first allphosphorescent OLED lighting panel was developed.

1 はじめに

近年,有機エレクトロルミネッセンス(以降"OLED"と省略)の照明用途への展開が脚光を浴びている。OLEDの薄く,太陽光に近いブロードな発光故に人の目に優しく,環境性能に優れるといった特徴を活かし,OLED独自の照明製品が発表されている¹⁾²⁾³⁾。

コニカミノルタは独自の材料, 層設計技術を用いて, ラボレベルで高性能のデバイスを開発してきた⁴⁾。この技術を基にコニカミノルタは, ドイツPhilips 社に生産委託する形で2011年秋にOLED照明パネルの量産を開始した⁵⁾。原理的に発光効率の高い全燐光型を世界で初めて採用し, 現在最も発光効率が高い製品を実現した。

Fig. 1 に製品の写真, Table 1 に主要初期性能を示す。低 駆動電圧等により、高発光効率を実現している。

量産化において最も重要な課題の一つが品質保証であり,再現性が良く生産性が高い検査方法が必要である。本報では新規に開発した信頼性評価技術について述べる。

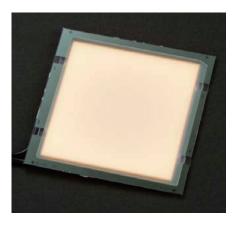


Fig. 1 World's first all phosphorescent OLED lighting panel product.

Table 1 Performance of OLED lighting panel product.

Item	Performance
Luminous efficacy	45 lm/W
Thickness	1.9 mm
Emission area	about 37 cm ²
Luminance	1,000 cd/m ²
Current / Voltage	71.5 mA / 3.6 V
Color coordinates	(x, y) = (0.45, 0.41)
Color temperature	2,800 K

^{*}コニカミノルタテクノロジーセンター(株) 材料技術研究所 有機EL製品開発室

2 量産における信頼性評価技術

OLED照明パネルの評価は、初期特性評価と信頼性特性評価の二つがある。初期特性、特に輝度や光束の評価の方法は、様々な他の光源の評価方法を元に標準化されているものが多い。しかし、信頼性評価については、評価方法や条件が標準化されていないのが現実である。

照明等に用いられる大面積発光OLEDパネルの信頼性 評価のうち、特に重要な特性が下記の三つである。

- ①寿命
- ②駆動中に絶縁破壊が生じ、短絡して非発光となる不良 (以降、ショート不良と呼ぶ)
- ③高温保存における発光ムラ

2.1 寿命評価方法

一般にOLEDの寿命特性としては、一定電流駆動時の輝度減衰特性が用いられる。輝度が初期に対して半分になるのに要する時間を輝度半減時間といい、寿命の指標として用いられる。ところがスペックで定義されている初期輝度1000 cd/m² 相当の基準条件では、輝度半減時間は数千時間以上となり、検査に1年近く要してしまう。量産における生産ロットの輝度半減時間をなるべく短期間で精度良く推定できれば、生産へのフィードバックによって改善、不良品の低減に繋げる事ができる。

2.2 駆動中のショート不良スクリーニング方法

電球の使用中に突然フィラメントが切れて発光しなくなる現象と同様に、OLEDの駆動中に何らかの原因で絶縁破壊を生じ、短絡して非発光となる不良が発生する。これがショート不良である。生産中に混入した異物や、外乱など様々な要因が考えられるが、寿命特性と違って徐々に進行する現象ではなく、発生の予測が非常に困難であるため、出荷後にショート不良が起こらないように、事前にスクリーニングする方法が量産では必須である。

2.3 発光ムラ評価方法

発光ムラの評価は主に目視検査で行われている事から、その度合いを再現よく評価し、数値化することが難しい。ディスプレイ業界でも評価方法が標準化されておらず、発光ムラのパターンがOLEDパネルの特性や材料によって固有であるという問題もある。

今回のOLEDパネルは、高温の強制劣化条件において 雲状の発光ムラが見られた。そのため、このムラをでき るだけ再現良く数値化する方法が必要であった。

3 寿命評価

OLEDパネルが駆動中にどのように劣化するかを解析すれば、早期の対応が可能になるばかりでなく、寿命特性を考慮した駆動回路の設計にも有効である。これらの目的で寿命の挙動を解析し、推定方法を検討した⁶⁾。

3.1 初期劣化と通常劣化

Fig. 2 に一般的な輝度減衰カーブの一例を示す(加速条件:初期輝度4000 cd/m²相当)。OLEDの輝度減衰カーブの挙動はこれまであまり議論されてこなかったが、この輝度減衰カーブを詳細に解析することによって、二つの成分、(1) 初期の早い輝度減衰(ここでは「初期劣化」と呼ぶ)、(2) 初期劣化の後に続く輝度減衰(ここでは「通常劣化」と呼ぶ)に分解できる事がわかった。各輝度減衰の温度依存性から活性化エネルギーを計算することによって、この二つの劣化成分が異なるメカニズムに支配されているか否かを知ることができる。

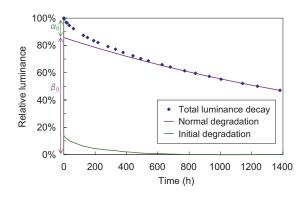


Fig. 2 Separation into initial degradation and normal degradation (under an accelerated condition).

The total luminance decay curve can be separated into an initial degradation curve (initial luminance decay) and a normal degradation curve (luminance decay after initial luminance decay). The normal degradation curve is obtained by extrapolating from data comprising the latter half of the total luminance decay curve. The initial degradation curve is obtained from the difference between the total luminance decay curve and the normal degradation curve.

Fig. 3 は、通常劣化成分と、実測の輝度減衰カーブから通常劣化成分を引いて得られた初期劣化成分を片対数でプロットしたものである。通常劣化、初期劣化それぞれがほぼ直線に乗ることがわかる。したがって、OLEDパネルの輝度減衰カーブ(ここでは「トータル劣化」と呼ぶ)は、2つの対数カーブの和からなると仮定できる。

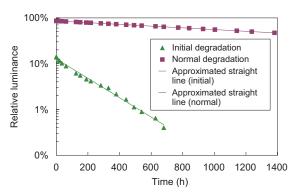


Fig. 3 Separated degradations on a semi-log plot (under an accelerated condition).

Both separated initial degradation and normal degradation are well fit to approximate straight lines on a semi-log graph.

3.2 輝度減衰カーブのモデル

3.2.1 輝度減衰カーブの式

a-Si TFTや酸化物半導体の代表格であるIGZO TFTは stretched exponential curveの式に沿う事が知られて いる⁷⁾⁸⁾。またOLEDの輝度劣化カーブはほぼ片対数で直 線の挙動を示す事が多い。

今回のOLEDパネルの各輝度減衰カーブも、前述のように片対数でほぼ直線になることから、下式のように表す事ができる。

$$\log(L) = a_1 \cdot t + a_2 \tag{1}$$

ここで、Lは初期輝度に対する相対輝度、 a_1 、 a_2 はそれぞれ片対数における傾き、切片を表す。t=0でL=1と仮定すれば、

$$a_2 = 0 \tag{2}$$

$$\log(L) = a_1 \cdot t \tag{3}$$

となる。ここで、相対輝度が1/e (eは自然対数) 倍になる時間 t_e を定義すると、

$$\log(1/e) = a_1 \cdot t_e \tag{4}$$

$$a_1 = -\frac{1}{t_e} \tag{5}$$

となり、輝度カーブは下式のように表す事ができる。

$$L = \exp\left(-\frac{t}{t_e}\right) \tag{6}$$

3. 2. 2 初期劣化

Fig. 4 は、初期で規格化した様々な温度条件での初期 劣化カーブである。t=0で規格化されたカーブにはほとんど温度依存性がない事がわかる。

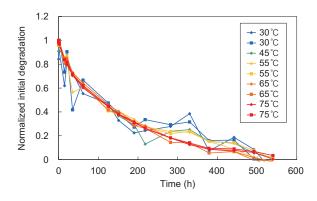


Fig. 4 Normalized initial degradation (under standard conditions).

Relative luminance decay of normalized initial degradation is independent of temperature.

一方、Fig. 5 に示す通り、t=0における初期劣化成分の比率 (トータル劣化における初期劣化の割合) には、強い温度依存性が認められた。t=0における初期劣化成分の比率を α_0 (Fig. 2 参照) とすると、初期劣化カーブは次式で表される。

$$L_{initial} = \alpha_0 \cdot L_1$$

$$= \alpha_0 \exp\left(\frac{E_{a,initial}}{kT}\right) \exp\left\{-\frac{t}{A_1}\right\}$$
(7)

ここで、 $L_{initial}$ は初期輝度に対する初期劣化成分の相対輝度, L_1 は初期劣化成分で規格化された初期劣化の相対輝度, $E_{a,initial}$ は初期劣化成分の活性化エネルギー, A_1 は初期劣化成分が初期の1/eに達する時間、kはボルツマン定数,Tは絶対温度を表す。

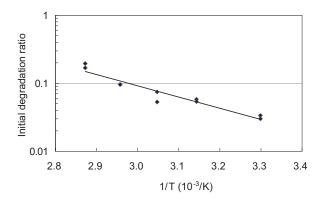


Fig. 5 Arrhenius plot of maximum initial degradation (under standard conditions).

Degree of the initial degradation rate clearly depends on temperature.

3.2.3 トータル劣化

同様に、t=0に外挿した通常劣化カーブの切片を β_0 とすると (Fig. 2)、トータルの輝度減衰カーブは下式で表される。

$$L = L_{initial} + L_{normal} = \alpha_0 \cdot L_1 + \beta_0 \cdot L_2$$

$$= \alpha_0 \exp\left(\frac{E_{a,initial}}{kT}\right) \exp\left\{-\frac{t}{A_1}\right\}$$

$$+ (1 - \alpha_0 \exp\left(\frac{E_{a,initial}}{kT}\right)) \cdot \exp\left\{-\frac{t}{A_2 \exp\left(\frac{E_{a,normal}}{kT}\right)}\right\} (8)$$

ここで, L_{normal} は初期輝度に対する通常劣化成分の相対輝度, L_2 は通常劣化成分で規格化された通常劣化の相対輝度, $E_{a,normal}$ は通常劣化成分の活性化エネルギー, A_2 は通常劣化成分が初期の1/eに達する時間を表す。

Fig. 6 は初期輝度1000 cd/m²相当の基準条件における,式8による輝度減衰カーブである。実際の輝度減衰カーブは式によくフィットしている。

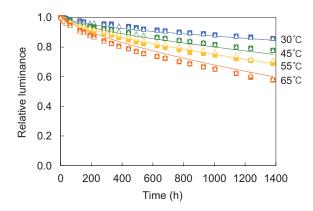


Fig. 6 Decay data and calculated curves (under standard conditions).

Relative luminance decay data are well fit to theoretical curves based on Formula (8).

この温度依存性から、初期劣化成分、通常劣化成分の活性化エネルギーは、それぞれ $E_{a, initial} = -0.055 \, \mathrm{eV}$ 、 $E_{a, normal} = 0.300 \, \mathrm{eV} \, と算出された。$

3.2.4 初期輝度条件とメカニズム

Fig. 7 は初期輝度 $4000 \, \mathrm{cd/m^2}$ 相当の加速条件における異なる温度での輝度減衰カーブである。この温度依存性から,各成分の活性化エネルギーは $E_{a, initial} = -0.055 \, \mathrm{eV}$ 、 $E_{a, normal} = 0.322 \, \mathrm{eV}$ と算出された。 $1000 \, \mathrm{cd/m^2}$ 時の値と比較すると, $E_{a, initial}$, $E_{a, normal}$ は良く一致し,初期輝度条件によらず一定であることがわかった。

OLEDの劣化挙動は、劣化中に起こり得る様々な反応の中で最も弱い部分が壊れる反応に支配されていると考えられ、算出された各活性化エネルギーは、その反応メカニズムを表していると考えられる。計算結果の一致は、初期劣化、通常劣化の前記メカニズムが、二つの初期輝度条件においてそれぞれ同じである事を示唆している。

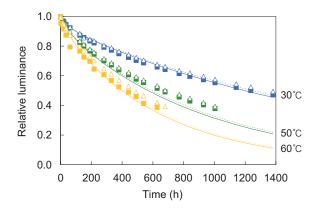


Fig. 7 Decay data and calculated curves (under an accelerated condition). Relative luminance decay data are well fit to theoretical curves based on Formula (8).

3.3 寿命推定方法

これまで初期輝度による加速評価から輝度半減寿命を推定する際、輝度比のn乗(nは加速係数)で計算される場合が多かった。しかし今回量産したOLEDパネルは、通常使用条件である基準条件では問題にならない初期劣化成分の変化が加速条件では大きくなるため、輝度半減時間に対する加速係数が生産ロットによって変化し、輝度半減時間の推定におけるノイズとなっていた。しかし前述のように初期劣化と通常劣化に分離することにより、通常劣化成分は一定の加速係数の関係が成り立つ事がわかり、低輝度条件における通常劣化の予測が可能であることがわかった。

多くの実測データから求めた通常劣化をワイブルプロットで統計的に解析し、MTTF (Mean Time To Failure、平均故障時間)を比較する事によって、信頼性の高い通常劣化の加速係数を求める事ができた。今回の基準条件(初期輝度1000 cd/m²相当)に対する加速条件(初期輝度4000 cd/m²相当)の加速係数は、1.5-1.6と推定された。これを用いて下記1~3のステップで計算を行うことにより、約300時間の短い評価時間で、基準条件での輝度半減時間を精度よく計算する事が可能となった。

- 1. 300時間までの加速条件の輝度減衰を初期劣化と通常 劣化に分離
- 2. 抽出された通常劣化カーブを、加速係数を用いて基準 条件に換算
- 3. 得られたカーブを実際の基準条件の300時間評価値を 切片として平行移動

今回開発した推定方法は、300時間程度の評価で、加速条件における初期劣化現象がほぼ完了している事、基準条件での初期劣化現象の残存量は無視できる程度に小さい事が前提条件であるが、これらが確認された事により、この方法を確立することができた。

また、この計算手法は輝度70%減衰時間など任意の輝度減衰時間の推定にも用いる事ができる。本開発OLEDパネルの1000 cd/m²条件での評価結果は、未だ輝度半減時間に達していないが、一例として輝度70%減衰時間とその300時間時点における推定値をTable 2に示す。300時間時点における推定値が、実測の結果とよく一致していることがわかる。

Table 2 Lifetime estimation and result.

Estimated 70% lifetime to initial luminance is very close to actual lifetime.

	Estimation at 300 h	Lifetime result
Test 1	3,890 h	3,680 h
Test 2	3,730 h	3,380 h

4 駆動中のショート不良スクリーニング方法

駆動中のショート不良を事前にスクリーニングする方法について検討を行った。

4.1 リーク電流特性と駆動中のショート不良

OLEDパネルの初期リーク電流特性と駆動中のショート不良確率の相関を明確にすることにより、初期のリーク電流特性の測定結果から駆動中のショート不良を予測する事が可能となった。

駆動中のショート不良と相関が強いリーク電流特性は 下記の二つである。

- (A) 逆バイアススキャン印加時に特定印加電圧領域で異常に大きく流れる電流量(スパイク電流量)
- (B) 一定逆バイアス印加時の漏れ電流量

(A)のスパイク電流量については、今回のOLEDパネルの測定結果において、-1.5V~-2.5Vの印加電圧領域で観察された場合はOLEDパネルの駆動中のショート不良発生確率が高くなる事がわかった。また、(B)の漏れ電流量においては、ある一定量以上の電流が流れる場合に、駆動中のショート不良発生確率が高くなる事がわかった。一例として、Table 3 に初期の逆バイアス印加時の漏れ電流量と、その後の駆動評価中に発生したショート不良発生確率を示す。

Table 3 Relation between leak current characteristics and shorts during operation.

Short circuits are clearly many in OLED panels when the leak current at $-3.5\,\mathrm{V}$ is larger than criteria.

Leak current at -3.5 V applied voltage	Short circuits during operation
>0.4 µA/cm ²	37%
≤0.4 μA/cm²	12%

4.2 駆動中のショート不良スクリーニング方法

前記漏れ電流の検査に加え、スパイク電流の検査方法を組み合わせる事によって、スクリーニング精度の高い検査方法を見出した。この方法でショート不良が発生し易いOLEDパネルを事前に判別することによって、市場で問題のない不良率とすることができた。これは半導体などの検査で行われている、逆バイアスのステップ電圧を印加しながら、微小電流を測定するものであり、OLEDパネルの面積や閾値電圧に応じた判断基準を設ける事によって、汎用性も高い評価方法である。

この検査方法によって得られた結果から、よりショート不良発生確率の低いOLEDパネルの層構成などの開発につなげる事が出来た。

5 発光ムラ評価方法

目視評価でも発光ムラの度合いを再現よく評価し,数 値化できる条件を検討した。

5.1 発光ムラ評価条件

目視による官能評価において、観察環境の影響は大きい。ムラに対する感度は、背景の明るさや検体の大きさなどに大きく左右される⁹⁾。特に評価を行う対象物の明るさに応じた観察者の目の環境順応が、評価値の安定性に大きく影響する。評価環境条件として、主に下記の項目を精査し、条件設定を行った。

- 評価環境の照度
- · 観察距離, 観察角度
- · 電流印加手順
- ・評価開始前の観察者の順応時間
- ・評価OLEDパネル交換時の観察者の順応時間

5.2 NDフィルター法

今回のOLEDパネルで高温の強制劣化条件においてみられる雲状の発光ムラの強度を定量化するために、異なる透過率のNDフィルターを用い、ムラの視認性の臨界をND値によって数値化する方法を導入した。1.0ステップのND値のフィルターを用い、0-4までの5ランクの評価値とした(Fig. 8)。

この評価方法により、発光ムラを定量化する事ができた。その結果、発光ムラが発生しにくい製造条件を見出せ、発光ムラ問題の根本的な改善につながった。

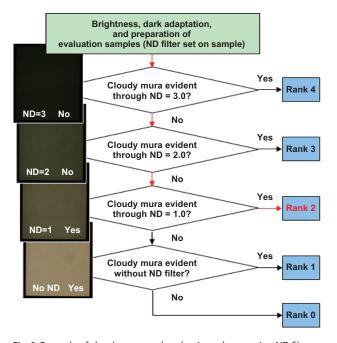


Fig. 8 Example of cloudy mura and evaluation scheme using ND filters.

Evaluation always started from a darker condition. Degree of
mura was ranked by an ND value at which the mura was visually
evident.

6 まとめ

量産において必要な信頼性評価技術の開発を行った。

①寿命特性は、短時間で確度の高い輝度半減時間の推定方法を確立し、出荷前の検査方法として採用した。②リーク特性とショート不良の関係を精査し、事前にショート不良確率の高いOLEDパネルをスクリーニングできる評価条件を見出した。③再現性の高い発光ムラ官能検査方法を構築した。この方法で得られる評価結果は、今後のより客観的かつ定量的な評価方法に繋がるものと考えられる。

これらの評価技術を開発する事によって、OLEDパネルの品質評価を短時間で精度良く行う事が可能となり、世界最高水準の発光効率であるOLED照明パネルを製品化することができた。最後に、このOLED照明パネルが世界初、そして人類史上初の全燐光型照明製品である事も付け加えておく。

7 謝辞

本信頼性評価技術開発の元となる生産委託において Philips Technologie 社生産技術チーム, 品質保証チーム より多大な協力を受けた。また, 本開発に用いた OLED パネルには, Universal Display Corporation 社の燐光材 料, 技術を含んでいる。ここに謝意を表する。

●参考文献

- 1) https://www.lumiblade-shop.com/index.php/
- 2) http://www.lumiotec.com/
- 3) http://panasonic-denko.co.jp/corp/news/1108/1108-12.
- T. Nakayama, K. Hiyama, K. Furukawa and H. Ohtani: "Development of Phosphorescent White OLED with Extremely High Power Efficiency and Long Lifetime", SID 2007 Digest, p.1018 (2007).
- 5) http://www.konicaminolta.jp/OLED
- 6) T. Tsujimura, K. Furukawa, H. Ii, H. Kashiwagi, M. Miyoshi, S. Mano, H. Araki and A. Ezaki: "World's First Phosphorescent OLED Product for Lighting Application", *IDW 2011 Proceeding, to be published.*
- 7) F. R. Libsch and J. Kanicki: "TFT Lifetime in LCD Operation", SID 1993 Digest, p.455 (1993).
- 8) C. Y. Wu, C. J. Lin, C. Y. Huang, H. L. Chen, Y. C. Kao, M. C. Hung, W. T. Lin, J. J. Chang, P. L. Chen and C. H. Chen: "An Efficient Method for Improving the Negative-Bias-Temperature Stress (NBTS) Stability of Amorphous In-Ga-Zn-O TFT", *SID 2010 Digest*, p.1298 (2010).
- 9) C. C. Chen, S. L. D. Hwang, C. H. Wen and C. C. Yeh: "Development of A JND Model on Mura Detection", *IDMC Proceedings*, p.823 (2005).